



52

10

11

21

22

43

Offenlegungsschrift 1768 021

Aktenzeichen: P 17 68 021.6

Anmeldetag: 22. März 1968

Offenlegungstag: 30. September 1971

Ausstellungspriorität: ---

30

Unionspriorität

32

Datum: 23. März 1967

33

Land: V. St. v. Amerika

31

Aktenzeichen: 625495

54

Bezeichnung: Verfahren zur Herstellung alkylaromatischer Kohlenwasserstoffe

61

Zusatz zu: ---

62

Ausscheidung aus: ---

71

Anmelder: Universal Oil Products Co., Des Plaines, Ill. (V. St. A.)

Vertreter gem. § 16 PatG: Willrath, H.-H., Dr.; Weber, D., Dipl.-Chem. Dr. rer. nat.;
Patentanwälte, 6200 Wiesbaden

72

Als Erfinder benannt: Fenske, Ellsworth Richard, Palatine, Ill. (V. St. A.)

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): 23. 10. 1969
Prüfungsantrag gemäß § 28 b PatG ist gestellt

BEST AVAILABLE

Dr. Dieter Weber

PATENTANWÄLTE

Telegrammadresse: WILLPATENT
Postscheck: Frankfurt/Main 67 68
Bank: Dresdner Bank AG. Wiesbaden
Konto Nr. 276 807

Hildastraße 18
P.O. Box 1327
Telefon (06121) 37 27 20

II/Doe 1768021
Case 1204

Universal Oil Products Company,
Des Plaines / Illinois - U S A
30, Algonquin Road

Verfahren zur Herstellung alkylaromatischer Kohlen-
wasserstoffe

Priorität: vom 23. März 1967
aufgrund der USA-
Patentanmeldung
625 495 beansprucht

Die Erfindung betrifft ein Alkylierungsverfahren zur Herstellung des Umsetzungsproduktes zwischen einem aromatischen und einem Olefinkohlenwasserstoff. Speziell betrifft die Erfindung die Herstellung aromatischer Mono-alkylate, die zur Umwandlung in Detergentien geeignet sind.

Es ist seit langem bekannt, daß die zufriedenstellende Ver-
nichtung von Abwasser und die Inaktivierung in Abwasser gelöster
Detergentien ein schwieriges aber äußerst wichtiges Problem
darstellt. Viele Detergentien, z.B. jene mit einer Alkylaryl-
struktur als organischem Anteil, neigen dazu, in hartem oder

109840/1652

weichem Wasser stabile Schäume in solchen Mengen zu bilden, daß solcher Schaum die Verstopfung von Abwasserbehandlungsanlagen erleichtert und die Bakterien vernichtet, die bei einer entsprechenden Abwasserbehandlung für eine ausreichende biologische Wirkung erforderlich ^{sind}. Auch ist es bekannt, daß die Alkylbenzolsulfonat-Detergentien, die durch Alkylierung von Benzol mit tetramerem Propylenalkylierungsmittel gewonnen werden, in modernen Abwasserbehandlungsanlagen nicht leicht biologisch abgebaut werden. In der Technik ist es ebenfalls bekannt, daß biologisch abbaubare lineare Alkylbenzolsulfonate zur Zeit auf dem Markt am meisten gefragt sind. Derzeit bekannte Methoden zur Herstellung der biologisch abbaufähigen Detergentien benutzen Normalparaffine als Quelle für die geradkettigen Alkylsubstituenten. Bisher bestanden nach dem Stand der Technik Reaktionsschemen für die Herstellung von linearen Alkylbenzolsulfonaten darin, daß man chlorierte, danach Benzol direkt mit den Alkylchloriden unter Verwendung von Aluminiumchlorid als Katalysator alkylierte; chlorierte und danach dehydrochlorierte und Benzol mit den resultierenden Olefinen unter Verwendung eines sauren Katalysators alkylierte; und in-dem man Paraffinkohlenwasserstoffe mit höherem Molekulargewicht, wie Wachse, krackte, um geeignete Olefine zu bilden, die dann zur Alkylierung von Benzol mit einem Säurekatalysator benützt wurden.

Man kann somit sehen, daß die üblichsten Methoden nach dem Stand der Technik verschiedene ziemlich komplizierte Verfahrensschritte umfassen. In jüngerer Zeit jedoch wurde ein Verfahren erfunden, bei dem Normalparaffine in ausreichender Reinheit für die direkte

109840 / 1652

BAD ORIGINAL

katalytische Dehydrierung der n-Paraffine zu den entsprechenden n-Monoolefinen der gleichen Kohlenstoffzahl hergestellt werden. Der jüngste Stand der Technik besteht in der Hauptsache darin, daß man beispielsweise Kerosin extrahiert, um n-Paraffine extrem hoher Reinheit zu gewinnen. Diese n-Paraffine von hoher Reinheit werden katalytisch zu n-Olefinen dehydriert. Der Dehydrierungsausfluß wird mit Benzol vermischt und in Gegenwart eines Säurekatalysators, wie Fluorwasserstoff, in Alkylbenzol umgewandelt. Der Alkylierungsausfluß wird in lineare Alkylbenzole und ein schweres Alkylatnebenprodukt getrennt. Die überschüssigen n-Paraffine werden gewöhnlich in den Dehydrierungsabschnitt zurückgeführt. In ähnlicher Weise wird überschüssiges Benzol in die Alkylierungszone zurückgeführt.

Die vorliegende Erfindung ist eine verbesserte Methode zur Durchführung der Alkylierung beispielsweise bei der oben beschriebenen neuerdings bekannten Methode zur Herstellung biologisch abbaufähiger linearer Alkylbenzolsulfonate.

Daher ist ein Ziel der vorliegenden Erfindung, ein Verfahren zur Herstellung eines linearen alkylaromatischen Monoalkylats zu erhalten, das zur Umwandlung in ein Detergen-s geeignet ist. Ein spezielles Ziel der Erfindung ist es, ein Verfahren zur Herstellung eines alkylaromatischen Monoalkylats mit einem Bromindex von weniger als 30 zu bekommen, das zur Umwandlung in ein Detergen-sprodukt geeignet ist.

Demgemäß liefert die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur

109840/1652

BAD ORIGINAL

Herstellung von alkyларomatischen Kohlenwasserstoffen, das
darin besteht, daß man

- a. einen alkylierbaren aromatischen Kohlenwasserstoff mit einem olefinischen Kohlenwasserstoffbeschickungsstrom in Gegenwart eines Säurekatalysators in einer ersten Reaktionszone bei einer relativ niedrigen Temperatur umsetzt,
- b. von dem resultierenden Ausfluß aus der ersten Reaktionszone eine erste Katalysatorphase und eine erste Kohlenwasserstoffphase abtrennt,
- c. wenigstens einen Teil der ersten Katalysatorphase zu der ersten Reaktionszone als Teil des Säurekatalysators zurückführt,
- d. die erste Kohlenwasserstoffphase in eine zweite Reaktionszone einführt, die auf einer relativ hohen Temperatur gehalten wird, und darin die Kohlenwasserstoffe in Gegenwart eines frischen Säurekatalysator umfassenden Katalysators weiter umsetzt,
- e. von dem resultierenden Ausfluß aus der zweiten Reaktionszone eine zweite Katalysatorphase und eine zweite Kohlenwasserstoffphase, die alkyларomatische Kohlenwasserstoffe umfaßt, abtrennt,
- f. wenigstens einen Teil der zweiten Katalysatorphase zu der ersten Reaktionszone als Teil des Säurekatalysators zurückführt, und
- g. die resultierenden alkyларomatischen Kohlenwasserstoffe gewinnt.

Ein weiteres Merkmal der vorliegenden Erfindung besteht darin, daß man die zweite Reaktionszone wenigstens $3,6^{\circ}\text{C}$ höher als die erste Reaktionszone hält. Bei einer anderen Ausführungsform nach der Erfindung wird wenigstens ein Teil der ersten Säurephase regeneriert und zu der zweiten Reaktionszone als wenigstens ein Teil der frischen Säure zurückgeführt.

Das Beschickungsmaterial für die Alkylierung der vorliegenden Erfindung ist hauptsächlich ein lineares Monoolefin, das vorzugsweise durch direkte Dehydrierung des entsprechenden n-Paraffinvorläufers gewonnen wurde. Typischerweise enthält das Olefinbeschickungsmaterial für die Alkylierung 10 bis 15 Kohlenstoffatome je Molekül, vorzugsweise 11 bis 14 Kohlenstoffatome je Molekül. Dieses lineare Monoolefin wird als Alkylierungsmittel für eine alkylierbare Verbindung verwendet, vorzugsweise für einen aromatischen Reaktionspartner, der die hydrophobe Gruppe in der Struktur des Detergens bildet, auf welches die vorliegende Erfindung letztlich gerichtet ist. Geeignete aromatische Reaktionspartner können Benzol, Toluol, Xylol, Phenol und Mononitrobenzol sein. Beim Arbeiten der vorliegenden Erfindung können außerordentlich hohe Ausbeuten des erwünschten Monoalkylats erhalten werden.

Die Alkylierung wird in Gegenwart eines geeigneten Katalysators durchgeführt, der in der Lage ist, die Kondensation zu fördern. Allgemein enthält der Katalysator ein anorganisches Material, das als sauer wirkende Verbindung gekennzeichnet ist und die Alkylierung nach dem Verfahren der vorliegenden Erfindung katalysiert. Geeignete Katalysatoren sind beispielsweise bestimmte Mineralsäuren, wie

Schwefelsäure mit nicht mehr als etwa 15 Gewichtsprozent Wasser und vorzugsweise weniger als etwa 8 Gewichtsprozent Wasser, einschließlich eines benützten Schwefelsäurekatalysators, der aus der Alkylierung von Isoparaaffinkohlenwasserstoffen mit monoolefinischen Kohlenwasserstoffen gewonnen wurde, Geeignet sind auch Fluorwasserstoffsäurekatalysatoren mit einer wenigstens 83 gewichtsprozentigen Konzentration und einem Gehalt von vorzugsweise weniger als etwa 10 Gewichtsprozent Wasser, verflüssigter wasserfreier Fluorwasserstoff, wasserfreies Alkylchlorid oder Alkylbromid, Bortrifluorid (vorzugsweise im Gemisch mit Fluorwasserstoffsäure) sowie andere sauer wirkende Katalysatoren. Der besonders bevorzugte Katalysator für die vorliegende Alkylierung ist Fluorwasserstoff mit einem Gehalt von wenigstens 83 Gewichtsprozent und vorzugsweise mit einem Gehalt von wenigstens 90 Gewichtsprozent Fluorwasserstoff.

Es sei festgestellt, daß einer der wesentlichen Gesichtspunkte der vorliegenden Erfindung darin besteht, daß man in der ersten Stufe der Alkylierungszone Katalysator verwendet, der vorher in der zweiten Stufe der Reaktionszone benützt wurde. Somit fließt im Effekt der Katalysator im Gegenstrom zur Strömungsrichtung der Kohlenwasserstoffreaktionspartner. Auch sei festgestellt, daß die Reaktionszone der ersten Stufe vorzugsweise bei einer niedrigeren Temperatur als die zweite Stufe arbeitet. In-dem man in der ersten Stufe eine relativ niedrige Temperatur aufrecht erhält, hält man unerwünschte Nebenreaktionen, wie Polymerisationen, auf einem Minimum. Es wurde jedoch gefunden, daß die für die Reaktion der ersten Stufe erwünschten niedrigen

Temperaturen die Wirkung hatten, unerwünschte Mengen an Alkylfluoriden zu liefern, die als eine Verunreinigung in dem erhaltenen Kohlenwasserstoffprodukt wirken. Entsprechend zer- setzt die in der zweiten Stufe der Reaktionszone aufrechter- haltene relativ hohe Temperatur wenigstens teilweise irgend- welche vorliegenden Alkylfluoride, so daß man ein Reaktions- produkt von extrem hoher Reinheit und in außerordentlich hoher Ausbeute erhält. Außerdem muß darauf hingewiesen werden, daß die Waschmittelindustrie verlangt, daß die linearen Alkylaro- maten im wesentlichen farblos und im wesentlichen frei von olefinischen Verunreinigungen sind. Entsprechend muß der Brom- index des erhaltenen Alkylats geringer als 30 sein und sollte vorzugsweise etwa 10 sein, obwohl in einigen Fällen ein Brom- index von 10 bis 20 zufriedenstellend sein kann. Nach einer Faustregel ist der Bromindex etwa gleich den Teilen je Million (ppm) der in dem Produkt enthaltenen Olefinkohlenwasserstoffe. Es wurde gefunden, daß hinsichtlich der Färbung zufriedenstellende Sulfonate erhalten werden können, wenn das Monoalkylat einen Standardfarbindex von weniger als 15 und vorzugsweise weniger als 10 besitzt. Typischerweise besitzt nach dem Verfahren der Erfindung das erwünschte Monoalkylat einen Standardfarbindex von etwa 5.

Wie aus den oben geschilderten Betriebsbedingungen klar wird, ist es bevorzugt, in der Alkylierungszone der ersten Stufe der vorliegenden Erfindung so zu arbeiten, daß der Verbrauch des n-Olefinalkylierungsmittels im wesentlichen vollständig ist. Damit ist gemeint, daß der Olefinkohlenwasserstoff in einem Aus-

maß von wenigstens 98 Gewichtsprozent aber weniger als 100 Gewichtsprozent verbraucht werden sollte. In ähnlicher Weise sollten die Betriebsbedingungen der zweiten Stufe der Alkylierung so ausgewählt sein, daß das restliche Olefinmittel vollständig verbraucht wird und irgendwelche Alkylfluoridverbindungen, die in dem Ausfluß aus der ersten Stufe enthalten sind, wenigstens teilweise zersetzt werden. Bei einer typischen Betriebsweise nach der vorliegenden Erfindung wird der Olefinkohlenwasserstoff letztlich in einer Menge von 99,9 Gewichtsprozent verbraucht.

Es wurde gefunden, daß beim Arbeiten nach der vorliegenden Erfindung die zweite Reaktionsstufe eine außerordentlich saubere Umsetzung ergab, so daß nur eine kleine Menge an teerartiger Verunreinigung in der Katalysatorphase gebildet wurde, wodurch die Gefahr einer Verunreinigung des erwünschten Monoalkylatproduktes mit färbendem Material, wie Teer und/oder Polymerisationsprodukten, auf ein Minimum herabgesetzt wurde. Außerdem fand man, daß der teilweise desaktivierte Säurekatalysator aus der zweiten Reaktionsstufe ausgezeichnet geeignet war, die in der ersten Reaktionsstufe erforderliche katalytische Reaktion zu bewirken, das heißt eine im wesentlichen vollständige Umsetzung zwischen dem Olefinkohlenwasserstoff und dem aromatischen Kohlenwasserstoff zu bewirken.

Bei der Methode der vorliegenden Erfindung ist es besonders bevorzugt, daß die Temperatur in der ersten Reaktionszone auf einem relativ niedrigen Stand gehalten wird, entweder durch geeignete Wärmeaustauscheinrichtungen, wie Wasserkühlung in dem Reaktions-

behälter, oder durch Vorkühlen der Reaktionspartner und des Katalysators, so daß das Reaktionsmedium auf der entsprechenden niedrigen Temperatur liegt. Demnach sind die Betriebsbedingungen in der ersten Reaktionszone vorzugsweise eine Temperatur im Bereich von 4 bis 49°C, typischerweise von 38°C, eine Verweilzeit im Bereich von 5 bis 25 Min., typischerweise von etwa 15 Min., und ein Volumenverhältnis von Katalysator zu Kohlenwasserstoff im Bereich von 0,2 : 1 bis 10 : 1, typischerweise von etwa 2 : 1. Um die Produktion des erwünschten Monoalkylats aus dem in das Verfahren eingeführten Alkylierungsmittel auf ein Maximum zu steigern, ist es allgemein bevorzugt, daß das Molverhältnis von aromatischer Verbindung zu Alkylierungsmittel größer als 1 : 1 ist und vorzugsweise im Bereich von etwa 2 : 1 bis etwa 15 : 1 liegt. Außerdem ist es besonders bevorzugt, daß ein Molverhältnis von aromatischem Kohlenwasserstoff zu Olefinkohlenwasserstoffen plus Alkylatprodukt aufrecht erhalten wird, das wenigstens so hoch wie 3 : 1 liegt und typischerweise bei etwa 8 : 1 liegen sollte. Die obere Grenze für dieses Verhältnis wird natürlich von der Wirtschaftlichkeit des Verfahrens bestimmt.

Wie oben erwähnt, umfassen die Betriebsbedingungen für die zweite Reaktionszone eine relativ hohe Temperatur. Das heißt, die Temperatur in der zweiten Reaktionszone sollte vorzugsweise wenigstens 3,6° höher als die Temperatur in der ersten Reaktionszone sein. Entsprechend bestehen diese bevorzugten Betriebsbedingungen in einer Temperatur im Bereich von 27 bis 66° C, typischerweise von etwa 49°C, in einer Verweilzeit im Bereich

von 5 bis 25 Min., typischerweise von etwa 15 Min., und in einem Volumenverhältnis von Säurekatalysator zu Kohlenwasserstoff im Bereich von 0,2 : 1 bis 10 : 1, typischerweise von etwa 1 : 1. Das Verhältnis von aromatischem Kohlenwasserstoff zu Olefinkohlenwasserstoff plus Alkylatprodukt sollte vorzugsweise in der zweiten Reaktionszone größer als 2 : 1 und typischerweise bei etwa 7 : 1 gehalten werden.

Hinsichtlich der Acidität des Katalysators (% HF) bei der Methode nach der Erfindung ist der Kontrollpunkt für die Acidität vorzugsweise der Gewichtsprozentsatz an Säure in dem Ablauf, der in die Katalysatorregenerierzone geführt wird, wie unter Bezugnahme auf die Zeichnung eingehender erläutert wird. Die Acidität des Säurekatalysators in der ersten Reaktionszone kann 86 bis 92 Gewichtsprozent betragen und liegt typischerweise bei etwa 90 %. Aciditäten über und unter diesem Bereich können in einigen Fällen in zufriedenstellender Weise verwendet werden, obwohl man in im wesentlichen keinem Fall die Acidität der Säure unter etwa 83 Gewichtsprozent fallen lassen sollte. In ähnlicher Weise sollte für die zweite Reaktionszone die Acidität des Säurekatalysators größer als 90%, nämlich 93 bis 100 Gewichtsprozent sein und typischerweise zwischen 93 und 94 Gewichtsprozent liegen. Der oben der Bequemlichkeit halber verwendete Begriff "frischer Katalysator" soll sowohl neuen Katalysator, der von außen in das Verfahren gebracht wird, so wie regenerierten Katalysator aus der Katalysatorregenerierzone bedeuten. Vorzugsweise ist der zu der Katalysatorregenerierzone geführte Katalysator 90 gewichtsprozentig, so daß der regenerierte Katalysator bequemerweise etwa 94 Gewichtsprozent aufweisen kann.

Unter Bezugnahme auf die Zeichnung wird die Erfindung nachfolgend weiter erläutert. Die Zeichnung stellt eine Ausführungsform der vorliegenden Erfindung dar, so daß die Erfindung nicht auf dieses Ausführungsbeispiel beschränkt ist.

Ein n-Paraffinkohlenwasserstoffstrom mit einer Reinheit von etwa 98 % und einer Kohlenstoffzahl im Bereich von 11 bis 14 gelangt in das Verfahren über Leitung 10, wo er, wenn erwünscht, mit zusätzlicher zurückgeführter n-Paraffinbeschickung aus Leitung 11 vermischt wird. Der gesamte Beschickungsstrom wird in die Dehydrierzone 12 geleitet, die eine Anlage mit feststehendem Katalysatorbett ist und unter relativ milden Temperatur- und Druckbedingungen arbeitet. Beispielsweise umfassen die Betriebsbedingungen für die Dehydrierungszone 12 eine Temperatur von etwa 466°C und einen Druck von etwa 2,0 atü. Ausreichend Wasserstoff wird in das System eingespeist, so daß ein Molverhältnis von Wasserstoff zu kombinierter Beschickung von etwa 8 aufrechterhalten wird. Vorzugsweise sind in dem vereinigten Beschickungsstrom für die Dehydrierungszone 12 etwa 2000 Teile je Million Wasser vorhanden. Ein Produktstrom entsprechender linearer Olefin-kohlenwasserstoffe, der zu etwa 95 % aus Monoolefinen besteht, wird aus der Zone 12 über Leitung 13 entfernt. Von den restlichen 5% des Materials in Leitung 13 besteht der größere Teil aus Dienen mit kleineren Mengen an aromatischen Kohlenwasserstoffen. Ein Nebenprodukt der Dehydrierung ist Wasserstoff von über 96 %-iger Reinheit, der aus Zone 12 durch nicht gezeigte Einrichtungen entfernt wird.

Der Katalysator, der in der Dehydrierungszone 12 verwendet wird, ist ein solcher, der die Dehydrierung der Paraffine zu den Monoolefinen ohne Isomerisierung der Normalparaffine oder der resultierenden Monoolefine zu den entsprechenden verzweigt-kettigen analogen Verbindungen fördert. Geeignete katalytische Mittel, die die Isomerisierung auf ein Minimum herabsetzen, sind die neutralen Oxyde der Elemente der Gruppe VI und Metallsulfide und/oder Metalloxyde der Metalle der Gruppe VIII des Periodensystems. Der bevorzugte Katalysator für die Dehydrierung, der geradkettigen Paraffinkohlenwasserstoffe umfasst die Edelmetalle oder Metallverbindungen von Platin und/oder Palladium auf einem neutralen oder basischen Träger, wie Tonerde.

Der Auslauf aus der Dehydrierungszone 12 in Leitung 13 wird mit Benzol aus Leitung 14 vermischt, und das Gemisch von Monoolefinen und Benzol gelangt über Leitung 15 in die erste Alkylierungszone 16. Der Ausfluß aus der ersten Alkylierungszone wird über Leitung 17 abgezogen und gelangt in die Trennzone 18, wo man ihn absitzen läßt, um die Säurekatalysatorphase von der Kohlenwasserstoffphase zu trennen. Die Säurekatalysatorphase wird aus der Trennzone 18 über Leitung 20 entfernt und zu der ersten Reaktionszone im Gemisch mit der Beschickung in Leitung 15 zurückgeführt. Ein Strom von relativ verbrauchtem Säurekatalysator wird, wenn nötig, von Leitung 20 abgezogen und gelangt über Leitung 21 in eine Katalysatorregenerierzone 22.

Die für die Katalysatorregenerierung erforderlichen Bedingungen sind für den Fachmann wohl bekannt. Die Regenerierung wird nor-

malerweise durch Kohlenwasserstoffdampfausstreifung des Säurekatalysators unter Bedingungen durchgeführt, die ausreichen, Alkylfluoride zu zersetzen und regenerierten Säurekatalysator als Dampfprodukt zu entfernen. Das zurückbleibende teerartige Material wird aus der Katalysatorregenerierzone 22 über Leitung 23 ausgetragen und zu einer nicht gezeigten Vorrichtung geführt. Der regenerierte Katalysator (hier als frischer Katalysator bezeichnet) wird aus der Zone 22 abgezogen und gelangt über Leitung 24 in Gemisch mit der Kohlenwasserstoffphase, die aus der Trennzone 18 über Leitung 19 geführt wird.

Unter erneuter Bezugnahme auf die Trennzone 18 wird die abgetrennte Kohlenwasserstoffphase, die nun im wesentlichen säurefrei ist, über Leitung 19 abgezogen und gelangt zu einer Heizeinrichtung 26, wo ihre Temperatur wenigstens $3,6^{\circ}\text{C}$ über die Temperatur in der ersten Reaktionszone 16 gesteigert wird. Die erhitzte Kohlenwasserstoffphase und Säurekatalysator werden über Leitung 33 mit relativ hoher Temperatur in die zweite Alkylierungszone 27 geleitet. Wenn erforderlich, wird über Leitung 25 zusätzlicher Katalysator als Ergänzung des Verfahrens eingeführt.

Der Ausfluß aus der zweiten Alkylierungszone wird über Leitung 28 abgezogen und gelangt in die Trennzone 29, wo eine Trennung zwischen der Säure und den Kohlenwasserstoffen bewirkt wird. Die abgetrennte Säurephase wird aus der Trennzone 29 abgezogen und gelangt über Leitung 31 in die zweite Reaktionszone 27 im Gemisch mit der Beschickung für die zweite Reaktionszone in

- 17 -

Leitung 33. Ein Teil des teilweise desaktivierten Säurekatalysators in Leitung 31 wird über Leitung 32 und Leitung 20 zurück zu der ersten Reaktionszone 16 geführt. Es sei demnach festgestellt, daß die einzige Quelle für Säurekatalysator für die erste Reaktionszone teilweise desaktivierter Katalysator ist, der vorher in der zweiten Reaktionszone benützt wurde.

Die Kohlenwasserstoffphase aus der Trennzone 29 gelangt über Leitung 30 zu der nicht gezeigten Gewinnungseinrichtung. Ein Monoalkylatprodukt mit einem Bromindex von weniger als 30 und typischerweise zwischen 10 und 20 wird in Leitung 30 aus dem Material gewonnen.

Aus der obigen Beschreibung kann man sehen, daß eine Ausführungsform der vorliegenden Erfindung durch wenigstens zwei Reaktionszonen gekennzeichnet ist, wobei jede Zone ihr getrenntes zirkulierendes Katalysatorsystem besitzt, und außerdem ist diese Ausführungsform des Verfahrens dadurch gekennzeichnet, daß der Säurekatalysator in der ersten Reaktionszone allein aus der zweiten Reaktionszone erhalten wurde.

PATENANSPRÜCHE

1. Verfahren zur Herstellung alkylaromatischer Kohlenwasserstoffe, dadurch gekennzeichnet, daß man

- a. einen alkylierbaren aromatischen Kohlenwasserstoff mit einem olefinischen Kohlenwasserstoffbeschickungsstrom in Gegenwart eines Säurekatalysators in einer ersten Reaktionszone bei relativ niedriger Temperatur umsetzt,
- b. von dem resultierenden Ausfluß aus der ersten Reaktionszone eine erste Katalysatorphase und eine erste Kohlenwasserstoffphase abtrennt,
- c. wenigstens einen Teil der ersten Katalysatorphase zu der ersten Reaktionszone als Teil des Säurekatalysators zurückführt,
- d. die erste Kohlenwasserstoffphase in eine zweite Reaktionszone, die auf einer relativ hohen Temperatur gehalten wird, einführt und darin die Kohlenwasserstoffe in Gegenwart von frischem Säurekatalysator weiter umsetzt,
- e. von dem resultierenden Ausfluß aus der zweiten Reaktionszone eine zweite Katalysatorphase und eine zweite Kohlenwasserstoffphase, die alkylaromatische Kohlenwasserstoffe umfasst, abtrennt,
- f. wenigstens einen Teil der zweiten Katalysatorphase zur ersten Reaktionszone als Teil des Säurekatalysators zurückführt und
- g. die resultierenden alkylaromatischen Kohlenwasserstoffe gewinnt.

109840/1652

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man die zweite Reaktionszone wenigstens $3,6^{\circ}$ höher als die erste Reaktionszone hält.

3. Verfahren nach Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß man die erste Reaktionszone auf einer Temperatur im Bereich von 4 bis etwa 49°C und die zweite Reaktionszone auf einer Temperatur im Bereich von 27 bis 66°C hält.

4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß man wenigstens einen Teil der ersten Katalysatorphase abzieht, regeneriert und als Teil des frischen Katalysators zu der zweiten Reaktionszone zurückführt.

5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß man den Rest der zweiten Katalysatorphase zu der zweiten Reaktionszone zurückführt.

6. Verfahren nach Anspruch 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß man als alkylierbaren aromatischen Kohlenwasserstoff Benzol, als olefinischen Kohlenwasserstoffbeschickungsstrom einen solchen aus geradkettigen Monolefinen mit 10 bis 15 Kohlenstoffatomen und als Säurekatalysator Fluor-wasserstoffsäure verwendet.

7. Verfahren nach Anspruch 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß man in der ersten und zweiten Reaktionszone mit einer Verweilzeit von 5 bis 25 Min. und einem Volumenverhältnis von Katalysator zu Kohlenwasserstoff von 0,2 : 1 bis 10 : 1 arbeitet.

109840/1652

8. Verfahren nach Anspruch 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß man in Gegenwart eines Überschusses an alkylierbarem aromatischem Kohlenwasserstoff alkyliert.

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images
problems checked, please do not report the
problems to the IFW Image Problem Mailbox**